

Пыркова А.А., Екидин А.А., Антонов К.Л.
pyalal@yandex.ru

ПОСТУПЛЕНИЕ ИНЕРТНЫХ РАДИОАКТИВНЫХ ГАЗОВ В АТМОСФЕРУ ПРИ НОРМАЛЬНОЙ ЭКСПЛУАТАЦИИ АЭС

Аннотация. Проведен анализ данных о выбросах инертных газов от атомных электростанций с реакторами различных типов. Для сравнения воздействия АЭС с различным типом реакторных установок было введено нормирование годового выброса на годовую выработку электроэнергии, ГБк/ГВт*ч. В работе использованы медианные значения таких удельных показателей, так как они менее чувствительны к случайным отклонением по сравнению со средними значениями. Анализа данных о выбросах АЭС Европы показал, что состав ИРГ в выбросах специфичен для каждой станции и не имеет устойчивого соотношения активностей во времени. Не меньше 50% активности выброса АЭС с любым типом реакторной установки определяют изотопы ^{41}Ar , ^{133}Xe , ^{135}Xe , ^{138}Xe . Значимость вклада остальных ИРГ в активность выбросов АЭС зависит от типа реакторной установки.

Ключевые слова: АЭС, удельный показатель, выбросы, инертный радиоактивный газ, радиоактивные изотопы, реакторная установка.

Annotation. The analysis of data on emissions of inert gases from nuclear power plants with reactors of various types. To compare the effects of NPPs with different types of switchgear, rationing of annual emissions for annual electricity generation, GBq / GWh, was introduced. We used the median values of such specific indicators, since they are less sensitive to random deviations compared to the average value. An analysis of the European NPP emissions data showed that the composition of the EWG emissions is specific for each plant and does not have a stable ratio of activities over time. Three isotopes determine at least 50% of the activity of an NPP emission with any type of reactor installation: ^{41}Ar , ^{133}Xe , ^{135}Xe . The significance of the contribution of the other RWGs to the activity of NPP emissions depends on the type of reactor installation.

Keywords: NPP, specific indicator, emissions, inert radioactive gas, radioactive isotopes, reactor facility.

Введение

Инертные или благородные газы – элементы 18 группы таблицы Менделеева. К данной группе принадлежат гелий, неон, аргон, криптон, ксенон и радон. Отличительной особенностью инертных газов является низкая реакционная способность в силу заполненности электронных оболочек. При нормальных условиях они существуют в форме одноатомных газов, не имеющих цвета, вкуса и запаха. Деление ядерного топлива приводит к образованию радиоактивных изотопов криптона и ксенона. Активация стабильного изотопа

аргона, содержащегося в атмосферном воздухе, приводит к образованию радиоактивного изотопа ^{41}Ar .

Оболочка тепловыделяющего элемента вместе с топливной матрицей является начальным барьером, препятствующим выходу в окружающую среду накапливающихся в топливе радиоактивных продуктов деления и элементов топливной композиции [10]. Выход газообразных продуктов деления за пределы твэла происходит главным образом через дефекты оболочки. Разгерметизация оболочки топлива в процессе эксплуатации возможна вследствие производственного дефекта при изготовлении, из-за нарушения условий эксплуатации, в результате механического повреждения тепловыделяющей сборки посторонними предметами. В случае дефектов оболочек с размерами 10-50 мкм в теплоноситель из топливной матрицы будут поступать газообразные продукты деления (газовая неплотность) [5].

При возникновении дефектов твэлов типа газовой неплотности механизм поступления радионуклидов из облученного топлива в теплоноситель определяется следующими процессами: диффузия газообразных, летучих и легкоплавких продуктов деления из топливной матрицы в пространство под оболочку твэлов, диффузия этих нуклидов из-под оболочки через неплотности в ней в теплоноситель [7]. Правилами ядерной безопасности реакторных установок атомных станций допускается использование повреждённых твэлов. С этой целью для дефектов типа газовой неплотности установлены [11]:

- эксплуатационный предел повреждения твэлов – не более 0,2% от числа твэлов в активной зоне;
- предел безопасной эксплуатации повреждения твэлов – не более 1% от числа твэлов в активной зоне.

В результате организованных и неорганизованных протечек теплоносителя, его испарения или дегазации инертные радиоактивные газы (далее ИРГ) поступают в вентиляционную систему АЭС, а далее выбрасываются в атмосферный воздух. Таким образом, при нормальной эксплуатации АЭС происходит поступление ИРГ в окружающую среду. Опубликованные данные показывают специфические особенности радионуклидного состава выбросов АЭС с различными типами реакторных установок [2-4]. Учет таких специфических особенностей необходим для разработки мероприятий оптимизации радиологической защиты населения и окружающей среды.

Радионуклидный состав выбросов ирг

Инертные радиоактивные газы формируют от 55% до 90% суммарной активности выбросов АЭС [1]. Большая их часть имеет период полураспада менее нескольких суток, что позволяет значительно снизить активность газообразных выбросов, производя задержку газов перед выбросом. Исключение составляет Kr-85 с периодом полураспада 10,77 лет, способный накапливаться в атмосфере. Оценки радиационного воздействия на население от выбросов радиоактивных веществ при нормальной эксплуатации АЭС показывают, что в число основных дозообразующих радионуклидов входят различные радиоактивные изотопы инертных газов. При работе реакторов типов AGR, BWR и LWGR ИРГ вносят наибольший вклад в формирование эффективной дозы критической группы населения [3].

МАГАТЭ рекомендует рассматривать 12 радиоактивных изотопов инертных газов, как важный фактор воздействия на окружающую среду при производстве электроэнергии на АЭС: ^{41}Ar , ^{85}Kr , $^{85\text{m}}\text{Kr}$, ^{87}Kr , ^{88}Kr , $^{131\text{m}}\text{Xe}$, ^{133}Xe , $^{133\text{m}}\text{Xe}$, ^{135}Xe , $^{135\text{m}}\text{Xe}$, ^{137}Xe , ^{138}Xe [12].

В России «перечень загрязняющих веществ, в отношении которых применяются меры государственного регулирования в области охраны окружающей среды» содержит 13 изотопов инертных газов: ^{41}Ar , ^{85}Kr , $^{85\text{m}}\text{Kr}$, ^{87}Kr , ^{88}Kr , ^{89}Kr , ^{127}Xe , ^{133}Xe , $^{133\text{m}}\text{Xe}$, ^{135}Xe , $^{135\text{m}}\text{Xe}$, ^{137}Xe , ^{138}Xe . В результате радиационно-технического обследования источников выбросов установлены 7 радиоактивных изотопов инертных газов, которые участвуют в формировании 99% дозы облучения населения от выбросов АЭС России при нормальной эксплуатации: ^{41}Ar , $^{85\text{m}}\text{Kr}$, ^{87}Kr , ^{88}Kr , ^{133}Xe , $^{133\text{m}}\text{Xe}$, ^{135}Xe [6]. В России до 2015 года проводился только контроль суммарной активности выброса ИРГ, без определения вклада каждого отдельного изотопа. В настоящее время для всех АЭС России установлены нормативы выбросов для каждого конкретного изотопа ИРГ и ведется мониторинг их поступления в атмосферный воздух.

Информация о радионуклидном составе ИРГ в выбросах 79 АЭС из 14 стран Европы за период с 1995 г по 2017 г.г. указывает на отсутствие единого перечня контролируемых радионуклидов. Наиболее часто в результатах мониторинга представлены сведения о 13 изотопах ИРГ: ^{41}Ar , ^{85}Kr , $^{85\text{m}}\text{Kr}$, ^{87}Kr , ^{88}Kr , ^{89}Kr , $^{131\text{m}}\text{Xe}$, ^{133}Xe , $^{133\text{m}}\text{Xe}$, ^{135}Xe , $^{135\text{m}}\text{Xe}$, ^{137}Xe , ^{138}Xe . В выбросах отдельных АЭС Франции эпизодически фиксируется ^{127}Xe , а выбросах АЭС Швеции редко идентифицируется ^{139}Xe [8]. В целом наблюдается специфика состава ИРГ в выбросах АЭС в зависимости от типа реакторной установки (далее РУ). На

рисунке 1 представлен вклад отдельных изотопов в суммарную активность выброса ИРГ по типам РУ: AGR, BWR, PWR, ВВЭР, РБМК.

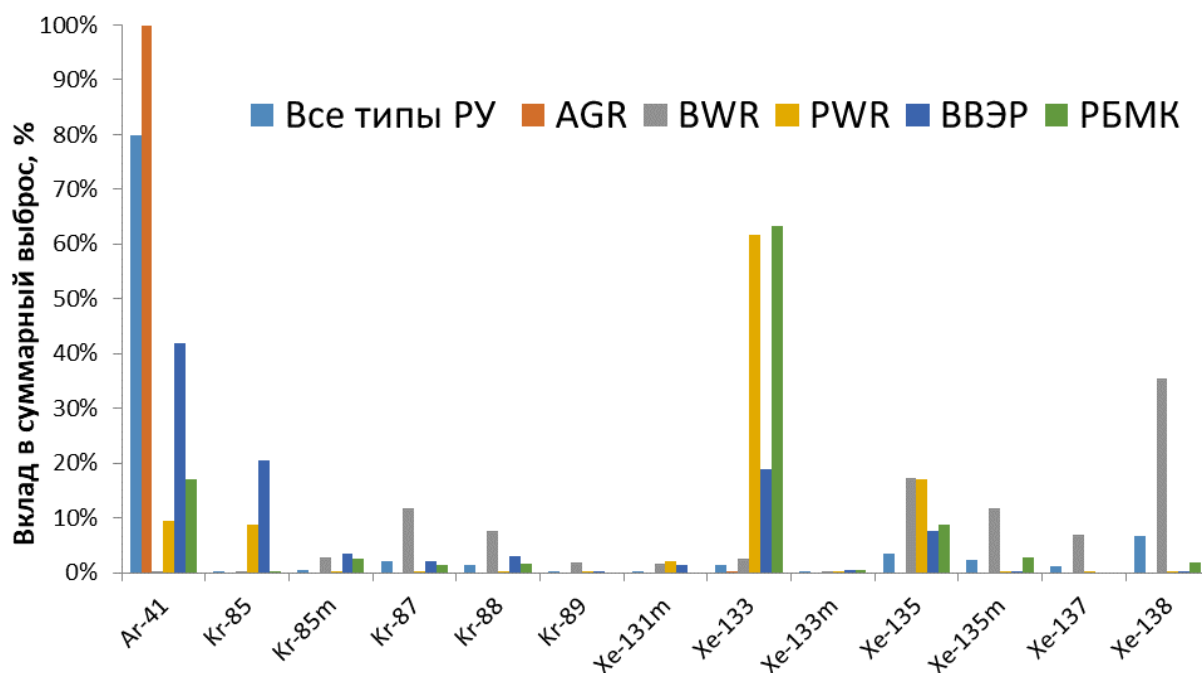


Рисунок 1 – Вклад отдельных изотопов в суммарную активность выброса ИРГ по типам РУ АЭС. Состав ИРГ в выбросах специфичен для каждой станции и не имеет устойчивого соотношения активностей. Не меньше 50% активности выброса АЭС с любым типом реакторной установки определяют три изотопа:

^{41}Ar , ^{133}Xe , ^{135}Xe , ^{138}Xe . Значимость вклада остальных ИРГ в активность выбросов АЭС зависит от типа реакторной установки.

Удельные показатели выбросов ИРГ АЭС Европы

Сравнение воздействия АЭС с различным типом РУ проведено по удельным показателям. В качестве удельного показателя выброса конкретного ИРГ рассматривается суммарный выброс активности (ГБк) за год, нормированный на произведенную электрическую энергию (ГВт*ч) за этот же период каждой АЭС – удельный показатель выброса, $\text{ГБк}^*/(\text{ГВт}^*\text{ч})$. Оценка удельного показателя выброса ИРГ выполнена по доступным данным годового выброса и производства электроэнергии для АЭС каждого типа в Европе [8, 9]. В работе использованы медианные значения таких удельных показателей, поскольку они менее чувствительны к случайным отклонениям по сравнению со средними значениями. Полученные удельные показатели выбросов ИРГ для АЭС Европы с разными типами реакторов представлены в таблице 1.

Таблица 1 – Характеристика удельных показателей выброса ИРГ АЭС Европы

Наименование изотопа ИРГ	Количество наблюдений	Удельный показатель, ГБк*(ГВт*ч) ⁻¹			
		Медиана	Среднее /Медиана	Минимум	Максимум
⁴¹ Ar	1141	1,34×10 ⁻²	1505,9	4,25×10 ⁻⁷	2,07×10 ³
⁸⁵ Kr	743	6,11×10 ⁻³	11,4	0,00	4,15
^{85m} Kr	550	8,50×10 ⁻⁴	334,6	4,09×10 ⁻⁹	4,46×10
⁸⁷ Kr	415	1,39×10 ⁻³	1108,4	3,48×10 ⁻⁹	2,91×10 ²
⁸⁸ Kr	463	2,24×10 ⁻³	403,2	0,00	1,46×10 ²
⁸⁹ Kr	123	9,00×10 ⁻⁴	871,0	4,08×10 ⁻⁸	6,71×10
¹²⁷ Xe	12	1,04×10 ⁻⁹	4005,1	4,50×10 ⁻¹⁰	4,99×10 ⁻⁵
^{131m} Xe	582	1,20×10 ⁻³	147,6	1,91×10 ⁻⁷	9,00×10
¹³³ Xe	985	3,48×10 ⁻²	11,8	0,00	1,88×10 ¹
^{133m} Xe	460	4,56×10 ⁻⁴	21,2	1,21×10 ⁻⁹	6,03×10 ⁻¹
¹³⁵ Xe	931	1,04×10 ⁻²	104,6	1,68×10 ⁻⁷	2,75×10 ²
^{135m} Xe	379	3,53×10 ⁻³	484,6	0,00	3,85×10 ²
¹³⁷ Xe	203	8,01×10 ⁻³	228,6	1,34×10 ⁻⁶	2,56×10 ²
¹³⁸ Xe	274	5,03×10 ⁻³	1401,2	1,69×10 ⁻⁷	1,19×10 ³
¹³⁹ Xe	4	3,41×10 ⁻⁴	1,3	8,57×10 ⁻⁵	9,47×10 ⁻⁴
Сумма ИРГ	1230	1,97×10 ⁻¹	119,2	2,56×10 ⁻⁵	2,76×10 ³

Полученные данные удельных показателей выбросов конкретных ИРГ специфичны для каждого изотопа и для каждой отдельной АЭС. Диапазон значений меняется на от 2 до 11 порядков. Большая кратность превышения средних значений от медианных указывает на значимое отличие совокупности полученных значений удельных показателей от нормального распределения для каждого конкретного изотопа ИРГ. Максимальные значения медиан удельных показателей, в порядке убывания, получены для ¹³³Xe, ⁴¹Ar, ¹³⁵Xe. Медианные значения удельных показателей остальных ИРГ на 1 – 7 порядков меньше. Различие удельных показателей может определяться многими факторами: тип РУ, период эксплуатации АЭС, культура безопасности и т.д. Представительная совокупность данных позволяет в дальнейшем провести анализ лучших, устойчивых и худших практик для оценки потенциала оптимизации радиационного воздействия выбросов АЭС при нормальной эксплуатации.

Формирование радиационного воздействия на население от выбросов ИРГ атомными станциями определяется величиной активности каждого радионуклида, времени экспозиции и величиной мощности дозы, создаваемой облаком ИРГ. Согласно рекомендациям МАГАТЭ для рассмотренных в таблице 1 изотопов ИРГ выполнена оценка парциального вклада в облучение населения от

радиоактивного облака. Для этого использованы медианные значения удельного показателя и значения мощности эффективной дозы на единицу объемной активности конкретного изотопа ИРГ [13]. Результаты оценки представлены в таблице 2.

Таблица 2 – Парциальный вклад изотопа ИРГ в облучение населения при выбросах АЭС Европы в условиях нормальной эксплуатации

Наименование изотопа ИРГ	Удельный показатель (медиана), ГБк·(ГВт·ч) ⁻¹	^a Мощность эффективной дозы на единицу объемной активности в воздухе, Зв·сут ⁻¹ /Бк·м ⁻³	Приведенная мощность эффективной дозы на единицу выработанной энергии, Зв·сут ⁻¹ /(Вт·ч)·м ⁻³	Парциальный вклад изотопа ИРГ в облучение
⁴¹ Ar	1,34×10 ⁻²	5,30×10 ⁻⁹	7,10×10 ⁻¹¹	51,2%
⁸⁵ Kr	6,11×10 ⁻³	2,20×10 ⁻¹¹	1,34×10 ⁻¹³	0,10%
^{85m} Kr	8,50×10 ⁻⁴	5,90×10 ⁻¹⁰	5,02×10 ⁻¹³	0,36%
⁸⁷ Kr	1,39×10 ⁻³	3,40×10 ⁻⁹	4,73×10 ⁻¹²	3,4%
⁸⁸ Kr	2,24×10 ⁻³	8,40×10 ⁻⁹	1,88×10 ⁻¹¹	13,6%
¹²⁷ Xe	1,04×10 ⁻⁹	9,70×10 ⁻¹⁰	1,01×10 ⁻¹⁸	0,00%
^{131m} Xe	1,20×10 ⁻³	3,20×10 ⁻¹¹	3,84×10 ⁻¹⁴	0,03%
¹³³ Xe	3,48×10 ⁻²	1,20×10 ⁻¹⁰	4,18×10 ⁻¹²	3,0%
^{133m} Xe	4,56×10 ⁻⁴	1,10×10 ⁻¹⁰	5,02×10 ⁻¹⁴	0,04%
¹³⁵ Xe	1,04×10 ⁻²	9,60×10 ⁻¹⁰	9,98×10 ⁻¹²	7,2%
^{135m} Xe	3,53×10 ⁻³	1,60×10 ⁻⁹	5,65×10 ⁻¹²	4,1%
¹³⁸ Xe	5,03×10 ⁻³	4,70×10 ⁻⁹	2,36×10 ⁻¹¹	17,0%

^a Применяется, как к работникам, так и к взрослым лицам из населения.

Согласно полученным оценкам, максимальное радиационное воздействие на население от выбросов ИРГ, оказывает ⁴¹Ar, который определяет не менее 51 % годовой эффективной дозы облучения при нормальной эксплуатации АЭС в Европе. В число основных дозообразующих изотопов ИРГ, формирующих не менее 99% эффективной дозы от выбросов АЭС Европы, входят ¹³⁸Xe (17%), ⁸⁸Kr (13,6%), ¹³⁵Xe (7,2%), ^{135m}Xe (4,1%), ⁸⁷Kr (3,4%), ¹³³Xe (3,1%). Остальные изотопы ИРГ обеспечивают около 0,5% радиационного воздействия.

Выявление групп корреляций позволяет рассматривать радиоизотопные отношения между парами радионуклидов в таких группах как инструмент контроля за источником выброса и способ оптимизации программ мониторинга. Любые отклонения от устойчивых корреляций будут означать отклонения от

нормальных условий эксплуатации источника. Для выявления возможных устойчивых корреляций значений удельных показателей ИРГ, выполнен кластерный анализ. На рис.2. представлены результаты кластерного анализа удельных показателей выбросов конкретных ИРГ. При этом использованы логарифмированные значения удельных показателей, что позволяет существенно снизить асимметрию в функциях плотности их одномерных распределений и корректно применить этот метод анализа.

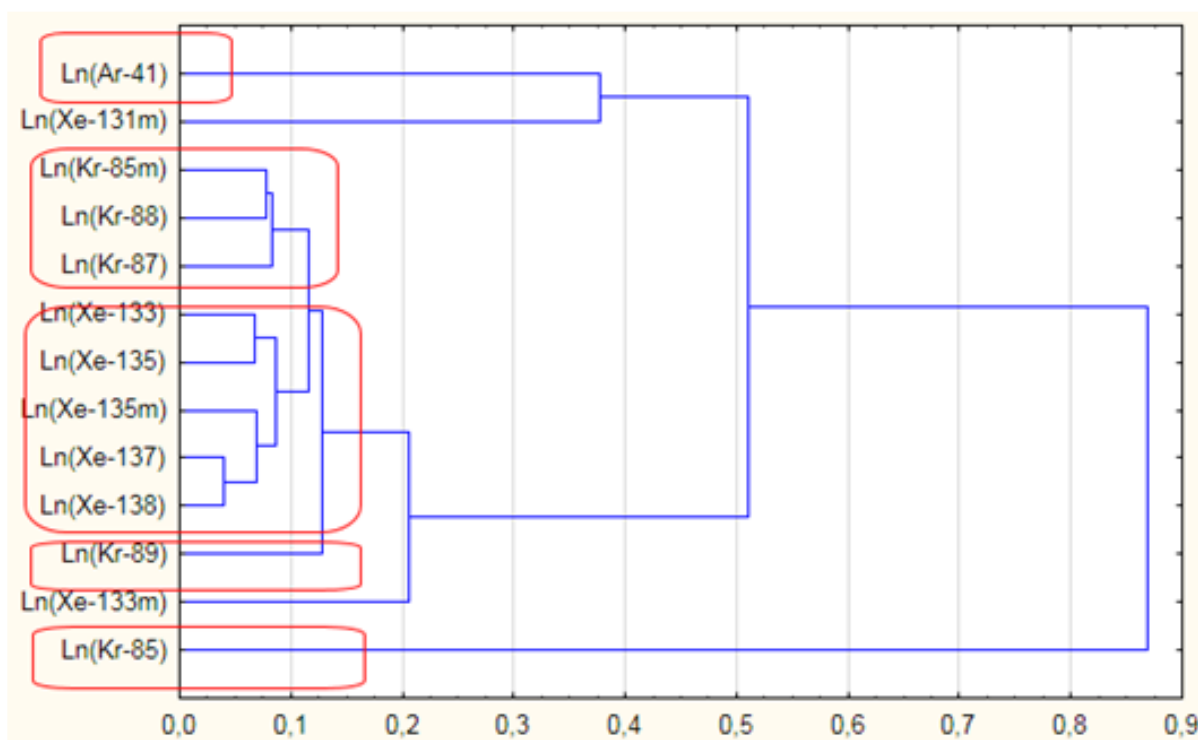


Рисунок 2 – Кластерный анализ удельных показателей выбросов конкретных ИРГ. В качестве меры расстояния между переменными (ось абсцисс) взято $(1-r)$, где r – коэффициент корреляции Пирсона между соответствующими парами логарифмированных удельных показателей.

Кластерный анализ показал ожидаемые группы корреляций для рассмотренных ИРГ:

- первая группа – $^{85\text{m}}\text{Kr}$, ^{87}Kr , ^{88}Kr ;
- вторая группа – ^{133}Xe , ^{135}Xe , $^{135\text{m}}\text{Xe}$, ^{137}Xe , ^{138}Xe .

В первую группу попали изотопы криптона, формирующие около 17% облучения населения от выбросов ИРГ. Вторая группа состоит из изотопов ксенона, определяющих примерно 31% радиационной нагрузки при выбросах ИРГ в условиях нормальной эксплуатации АЭС Европы.

Менее выраженные связи с другими ИРГ получены для изотопов: ^{41}Ar , $^{131\text{m}}\text{Xe}$, $^{133\text{m}}\text{Xe}$, ^{89}Kr , ^{85}Kr . В этой группе радиационное воздействие на 99,7% обусловлено ^{41}Ar .

Заключение

Реализованная в России практика нормирования и мониторинга выбросов ИРГ при нормальной эксплуатации АЭС соответствует рекомендациям МАГАТЭ. Контролируемые радионуклиды составляют основную активность выброса и участвуют в формировании облучения критической группы населения.

Удельные показатели выбросов конкретных ИРГ специфичны для каждого изотопа и для каждой отдельной АЭС, а диапазон значений меняется на от 2 до 11 порядков. Широкий диапазон значений позволит в дальнейшем провести ранжирование АЭС по категориям наилучшие, устойчивые и худшие практики для целей оптимизации.

Структура радионуклидного состава ИРГ в выбросах АЭС специфична для каждой АЭС, но имеет общие характеристики для однотипных реакторных установок. Не меньше 50% активности выброса АЭС с любым типом реакторной установки определяют изотопы ^{41}Ar , ^{133}Xe , ^{135}Xe , ^{138}Xe . Значимость вклада остальных ИРГ в активность выбросов АЭС зависит от типа реакторной установки.

Радиационное воздействие на население от выбросов АЭС Европы в условиях нормальной эксплуатации определяют 7 изотопов инертных газов: ^{41}Ar (51%), ^{138}Xe (17%), ^{88}Kr (13,6%), ^{135}Xe (7,2%), $^{135\text{m}}\text{Xe}$ (4,1%), ^{87}Kr (3,4%), ^{133}Xe (3,1%).

Библиографический список

1. Пышкина М. Д. Определение основных дозообразующих нуклидов в выбросах АЭС PWR и ВВЭР / М. Д. Пышкина // Биосферная совместимость: человек, регион, технологии. – 2017. – № 2 (18). – С. 98–107.
2. Десятов Д. Д. Оценка поступления трития в окружающую среду от выбросов АЭС / Д. Д. Десятов, А. А. Екидин // Биосферная совместимость: человек, регион, технологии. – 2018. – № 1 (21). – С. 88–96.
3. Екидин А. А. Идентификация основных дозообразующих радионуклидов в выбросах АЭС / А. А. Екидин, М. В. Жуковский, М. Е. Васянович // Атомная энергия. – 2016. – Т. 120, № 2. – С. 106–108.
4. Назаров Е. И. Оценка поступления углерода-14 в атмосферу, обусловленного выбросами АЭС / Е. И. Назаров, А. А. Екидин, А. В. Васильев // Известия вузов. Физика. – 2018. – Т. 61, № 12/2 (732). – С. 67–73.

5. Пименов С. В. Совершенствование трекового метода контроля герметичности оболочек твэлов реактора ИВВ-2М / С. В. Пименов, А. А. Дьяков, А. А. Екидин // Биосферная совместимость: человек, регион, технологии. – 2017. – № 2 (18). – С. 30–36.
6. Екидин А. А. Современные технологии управления воздействием на окружающую среду как инструмент соблюдения принципа ALARA / А. А. Екидин, А. В. Васильев, М. Е. Васянович // Биосферная совместимость: человек, регион, технологии. – 2017. – № 2 (18). – С. 67–74.
7. Возможный подход к изменению эксплуатационных пределов и пределов безопасной эксплуатации повреждения твэлов существующих реакторных установок по дефектам типа газовой неплотности в связи с переходом на другие типы топлива / А. А. Строганов, А. В. Курындин, А. Ю. Аникин, И. В. Дедова // Ядерная и радиационная безопасность. – 2014. – № 3 (73). – С. 14–20.
8. European Commission Radioactive Discharges Database (RADD). – URL: <http://europa.eu/radd/nuclideDischargeOverview.dox?pageID=NuclideDischargeOverview> (дата обращения: 01.02.2019).
9. Международное Агентство по Атомной Энергии : офиц. сайт. – URL: <https://pris.iaea.org/PRIS/> (дата обращения: 01.02.2019).
10. Бахметьев А. М. Методы оценки и обеспечения безопасности ЯЭУ / А. М. Бахметьев, О. Б. Самойлов, Г. Б. Усынин. – Москва : Энергоатомиздат, 1988. – 136 с.
11. Об утверждении и введении в действие федеральных норм и правил в области использования атомной энергии «Правила ядерной безопасности реакторных установок атомных станций» : постановление от 10 дек. 2007 года № 4 : НП–082–07. Правила ядерной безопасности реакторных установок атомных станций. – Москва, 2007. – URL: <http://docs.cntd.ru/document/902083695> (дата обращения: 01.02.2019).
12. INPRO Methodology for Sustainability Assessment of Nuclear Energy Systems: Environmental Impact. – Vienna : IAEA, 2016. – Vol. 12/13. – P. 40–44. – (IAEA Nuclear Energy Series ; № NG-T-3.15).
13. Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards. Part 3 = Радиационная защита и безопасность источников излучения. Международные основные нормы безопасности. Общие требования безопасности. Ч. 3. – Vienna : IAEA, 2015. – (IAEA Safety Standards Series ; № GSR). – URL: https://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/-Pub1578_web-57265295.pdf (дата обращения: 13.05.2019).